

## Na 蒸气中双支受激超喇曼散射的观察

王 骐 王雨三 王月珠 韩晓峰 马祖光

(哈尔滨工业大学光电子技术研究所)

## Dual-branch stimulated hyper-Raman scattering in sodium vapor

Wang Qi, Wang Yusan, Wang Yuezhu, Han Xiaofeng, Ma Zuguang

(Institute of Opto-Electronic Technology, Harbin Institute of Polytechny, Harbin)

**提要:** 首次同时观察到共振 Na4D 态激励时,  $3S \rightarrow 4P_{3/2}$ ,  $4P_{1/2}$  双支受激超喇曼散射, 并同时观测到与之级联的  $4P \rightarrow 4S$  等双支原子跃迁谱线。

**关键词:** 双支受激超喇曼散射

## 一、前 言

介质中受激超喇曼散射 (SHRS), 是一种高阶非线性效应, 可通过 SHRS 观察了解强光(激光)与物质相互作用, 观察介质中非线性过程, 更由于 SHRS 频移特点, 它将比泵浦光有宽出一倍的可调谐范围, 使之可在某些应用中(如激光光谱技术)做为一种新的可调谐相干光源。

本文利用脉冲染料激光泵浦, 首次同时观察到 Na 蒸气中  $3S \rightarrow 4P_{3/2}$ ,  $3S \rightarrow 4P_{1/2}$  双支受激超喇曼散射现象, 并观察到与之级联的  $4P \rightarrow 4S$ ,  $4S \rightarrow 3P$ ,  $3P \rightarrow 3S$  各荧光辐射。

## 二、实验装置

用 EMG101(或 EMG 201 MSC) 准分子激光器泵浦 FL 2002 E 染料激光器。染料

用 R6G, 输出能量( $\lambda=578.70 \text{ nm}$  处)  $4 \text{ mJ}$ , 线宽为  $0.016 \text{ nm}$ 。激励光经聚焦透镜聚焦进热管炉, 焦点处功率密度(峰值)可达  $2 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$  以上, 信号接收端可放置锗片(Ge)滤除  $\lambda < 1.8 \mu\text{m}$  的辐射。实验采用 WDG-30 单色仪, 狭缝取  $50 \sim 100 \mu\text{m}$ , 在  $2 \mu\text{m}$  附近分辨率为  $0.5 \sim 1 \text{ nm}$ 。用 PbS 做光电转换器件。

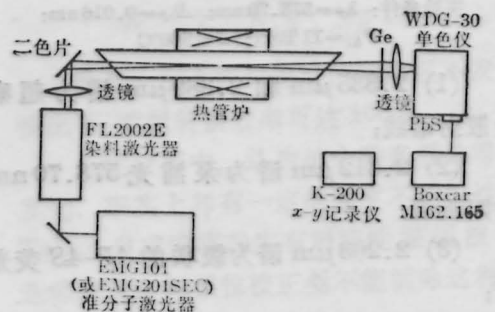


图1 实验装置

收稿日期: 1987年10月5日。

### 三、Na/Na<sub>2</sub> 系统近红外谱观察

实验中热管炉温度取  $T=560^{\circ}\text{C}$ ，内充 Ar 缓冲气体 11Torr(与 Na/Na<sub>2</sub> 蒸气压平衡)。泵浦波长取  $\lambda_p=578.70\text{ nm}$ 。单色仪用 300 L/mm 光栅，入射与出射狭缝各为 100  $\mu\text{m}$ 。对被探测波长 2  $\mu\text{m}$  附近荧光探测器用 PbS, 当不放置 Ge 滤光片时, 测得的荧光光谱如图 2 所示, 图中共出现六个谱区, 如果放置 Ge 片则有四个谱区消失, 说明这四个谱区是某个谱的高级次谱。可从能量关系判断出六个谱区分别为:

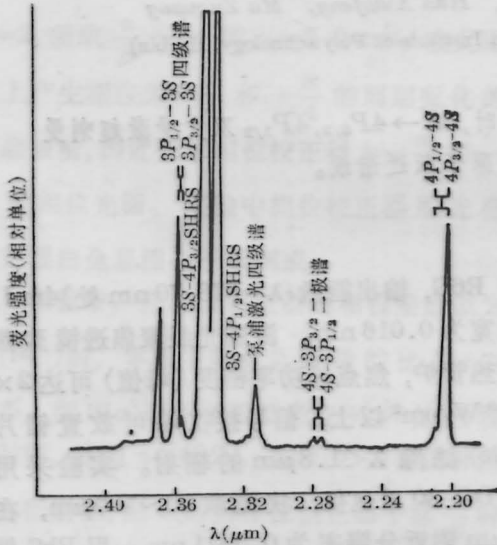


图 2 双光子近共振泵浦 Na4D 时, 钠蒸气中的近红外谱

实验条件:  $\lambda_p=578.70\text{ nm}$ ;  $\Delta\lambda_p=0.016\text{ nm}$ ;  
 $P_{\text{Ar}}=11\text{ Torr}$ ;  $T=560^{\circ}\text{C}$

(1) 2.335  $\mu\text{m}$  和 2.339  $\mu\text{m}$  谱为超喇曼散射谱线;

(2) 2.312  $\mu\text{m}$  谱为泵浦光 578.70 nm 的四级谱;

(3) 2.203  $\mu\text{m}$  谱为级联的 4P-4S 荧光谱;

(4) 2.355  $\mu\text{m}$  和 2.357  $\mu\text{m}$  谱为  $3P_{3/2}-3S$ 、 $3P_{1/2}-3S$  跃迁 589.00 nm、589.60 nm 的四级谱;

(5) 2.273  $\mu\text{m}$  和 2.279  $\mu\text{m}$  谱应为  $4S-3P_{3/2}$ (1.138  $\mu\text{m}$ ) 和  $4S-3P_{1/2}$ (1.141  $\mu\text{m}$ ) 的二级谱;

(6) 2.370  $\mu\text{m}$  谱线来源尚未查明。

从图 2 中各谱的强度关系比与图 3 能级图中级联跃迁次序应有的强度比是吻合的, 但其中 3P-3S 荧光强度却要高得多, 其原因是: 实验中被泵浦的是 Na/Na<sub>2</sub> 蒸气系统, Na<sub>2</sub> 被  $\lambda_p=578.70\text{ nm}$  泵浦光可直接由基态  $X^1\Sigma_u^+$  激励到  $A^1\Sigma_u^+$  态( $v'=25$ ), 即可将钠分子直接激励到激发态的高振动态上。

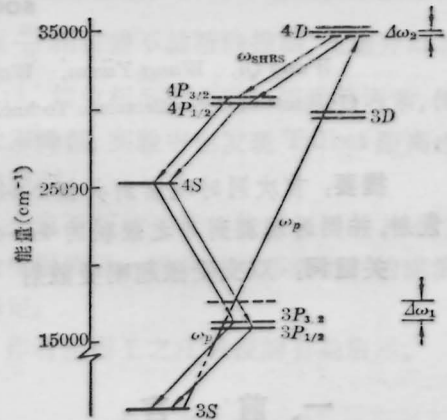
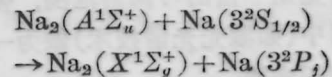


图 3 有关的钠原子能级图及  $3S-4P_{3/2}$ 、 $4P_{1/2}$  超喇曼散射跃迁

文献[1]中 E. K. Kraulinya 等人详细讨论了处于激发态的 Na<sub>2</sub> 与基态原子 Na(3S) 间碰撞过程后指出, 存在如下过程:



其能量转移速率  $K$  可由文中公式计算, 并可由  $K$  进一步算出平均的能量转移微分截面  $Q$ , 它们依赖于激发 Na<sub>2</sub> 的能量(激励波长)对  $\lambda_p=500\sim 600\text{ nm}$ ,  $K$  值约在  $1\times 10^{-9}$  ( $\text{cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$ )量级上,  $Q$  值为  $1\times 10^{-14}$  ( $\text{cm}^2$ ) 量级, 这说明上述过程产生几率还是相当可观的, 即在 Na 蒸气中产生 SHRS 过程及级联过程中, 由于 Na<sub>2</sub> 分子直接被激励并随之产生的碰撞过程, 使 3P 态 Na 原子数增多, 造成了 3P-3S 荧光强度增大。

#### 四、Na 蒸气中双支受激超喇曼散射的观察

在获得图 2 谱的条件下, 已观察到双支超喇曼散射谱线。图 4 是将 Ge 片及中性衰减片放置在单色仪前时单独对超喇曼散射的观察, 波长值见表 1, 从测得的超喇曼散射谱可见, 终态为  $4P_{3/2}$  的谱线强度要大于终态为  $4P_{1/2}$  谱。其原因如下:

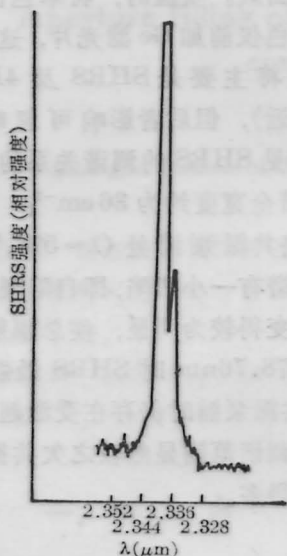


图 4 钠蒸气中的双支受激超喇曼散射(SHRS)谱

表 1

终 态	超喇曼散射谱线波长(μm)	
	理论值(空气)	实验值
$4P_{3/2}$	2.338	2.339
$4P_{1/2}$	2.336	2.336

超喇曼散射为三光子过程, 超喇曼散射增益因子为<sup>[2]</sup>:

$$G = \frac{N \cdot I_p^2 \cdot \omega_s e^6}{30 \hbar^5 (5 \epsilon_0 c)^3 \Gamma} \Phi \theta \quad (1)$$

其中  $\Phi$  对终态为  $4P_{3/2}$  时为:

$$\Phi = \frac{400}{27}$$

$$\times \left\{ \frac{\langle 4P | r | 4d \rangle \langle 4d | r | 3P \rangle \langle 3P | r | 3S \rangle}{\Delta \omega_1 \cdot \Delta \omega_2} \right\}^2 \quad (2)$$

其中

$\Delta \omega_1 = \omega_{3S3P} - \omega_p$   $\Delta \omega_2 = \omega_{3S4d} - 2\omega_p$   
 $\omega_{3S3P}$ ,  $\omega_{3S4d}$  为相应能级对应的共振能量;  $\omega_p$  为泵浦光能量;  $\Gamma$  为自发超喇曼辐射半宽度;  $N$  为原子密度;  $I_p$  为泵浦强度;  $\omega_s$  为共振频率。

终态为  $4P_{1/2}$  超喇曼散射的  $\Phi$  值将是终态为  $4P_{3/2}$  的值的一半<sup>[2]</sup>, 也即其增益因子要小一倍以上。在两条超喇曼散射竞争过程中, 增益大的易于首先形成受激辐射, 并由于增益饱和, 会将终态为  $4P_{1/2}$  的超喇曼过程抑制, 使得后者不易观察到, 同时这也说明如果能有足够的泵浦和获得足够的增益长度, 便可以使双支超喇曼散射过程同时被观察到, 本文首次同时观察到终态为  $4P_{3/2}$ 、 $4P_{1/2}$  双支过程正证明了这点。

图 5 是超喇曼散射强度及频移与泵浦波长的调谐关系。泵浦波长每次改变 0.10 nm, 图中右部谱线是泵浦光的四级谱, 左部分谱是随泵浦光波长改变得到的 SHRS 谱线频移关系, 列于表 2。理论计算已用空气折射

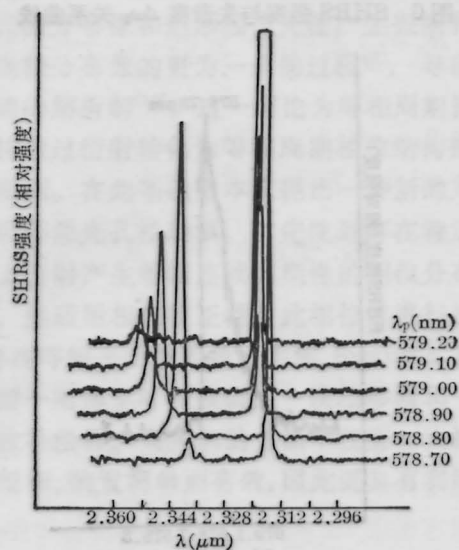


图 5 SHRS 波长随泵浦波长的调谐关系

表 2

泵浦波长 (nm)	$\Delta\omega_p$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	SHRS 波长( $\mu\text{m}$ )		频移量 ( $\text{cm}^{-1}$ )	相对 强度
		实验值	理论值		
578.70		2.339	2.338		4.0
578.80	3.0	2.341	2.340	4.9	51.5
578.90	6.0	2.346	2.344	12.7	29.5
579.00	9.0	2.349	2.347	18.2	14.0
579.10	12.0	2.352	2.350	23.6	9.5
579.20	15.0	2.354	2.354	27.2	3.0

率进行了修正 ( $n_0=1.0002926$ )。实测值与理论值吻合得相当好。

可从图 5 中找出相对强度与失谐度  $\Delta\omega_2$  的关系(见图 6)。可以看到这种关系符合由(1)、(2)式指出的 SHRS 强度与  $\Delta\omega_2$  的平方反比关系(此刻,可认为  $\Delta\omega_1$  为常数)。图 6 中

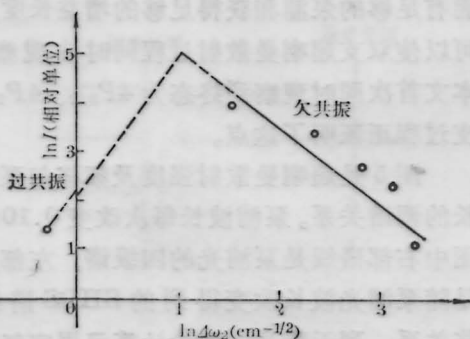


图 6 SHRS 强度与失谐度  $\Delta\omega_2$  关系曲线

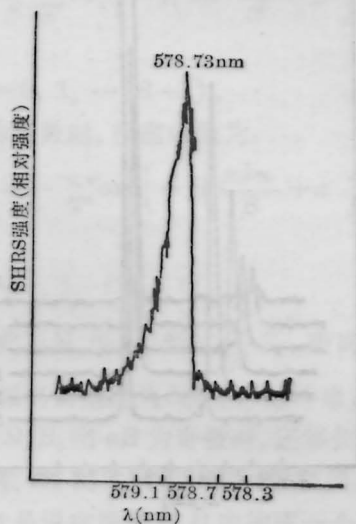


图 7 SHRS 激发函数

虚线部分是根据图 7 的激发函数做出的。

实验中曾观察近共振中间能态  $3P$  态泵浦(即  $\Delta\omega_1 \approx 0$ )情况,此时 SHRS 消失,因为近  $3P$  共振时,双光子能量与  $4D$  态相差  $\Delta\omega_2$ ,约  $600 \text{ cm}^{-1}$ ,而在近  $4D$  共振泵浦时( $\Delta\omega_2 \approx 0$ ),  $\Delta\omega_1$  约为  $300 \text{ cm}^{-1}$ ,此时有明显的 SHRS 产生, Li 中近  $4D$  共振时,  $\Delta\omega_1$  约为  $3405.66 \text{ cm}^{-1}$ ,相当于 Na 中的 10 倍,但仍观察到了 SHRS 现象<sup>[3]</sup>。

图 7 是超喇曼散射谱强度随泵浦波长调谐时的变化曲线。实验时,将单色仪调到零级输出,单色仪前加  $G_0$  滤光片,这时探测到的谱强度将主要是 SHRS 及  $4P-4S$  谱( $2.2 \mu\text{m}$  附近),但后者影响可忽略(见图 2)。从中可见 SHRS 的调谐关系的特点为:

- ① 调谐全宽度约为  $36 \text{ cm}^{-1}$ ;
- ② 严格共振泵浦处 ( $\lambda=578.73 \text{ nm}$ ), SHRS 强度谱有一小凹陷,即自陷现象,由于此时的吸收变得较为明显,使总辐射强度减弱,而  $\lambda_p=578.76 \text{ nm}$  时 SHRS 最强;
- ③ 过共振泵浦时仍存在受激超喇曼散射过程,但调谐范围显然较之欠共振泵浦的调谐范围窄得多。

## 五、与 SHRS 级联的荧光光谱观察

图 3 中已经给出了可能产生的级联跃迁过程,图 2 给出了对这些级联过程荧光光谱的观察。

图 8 是单独对  $4P-4S$  跃迁过程荧光辐射观察,表 3 给出了观测到的波长与理论计算值比较,两者非常吻合。

图 8 表明,  $4P_{3/2}-4S$  与  $4P_{1/2}-4S$  两荧光强度,前者明显大于后者,这与各自来源于双支 SHRS 的不同过程的级联是符合的。级联辐射的观察进一步由实验证实了关于双支 SHRS 的终态各是  $4P_{3/2}$ 、 $4P_{1/2}$  的结论。  
(下转第 24 页)

密度在波长 600 nm 处大致为每  $11\text{ cm}^{-1}$  中有一个模。因而只有适当调节液滴的大小(亦即  $x$ ) 使具有足够反馈的模能处在 Raman 线宽范围之中,以产生组合 Stokes SRO。

与乙醇液滴不同,  $\text{CCl}_4$  液滴在用 355 nm 激光泵浦时没有观察到 Stokes SRO。  $\text{CCl}_4$  液滴在受到 532 nm 激光泵浦时很容易产生 Stokes SRO<sup>[4]</sup>, 我们已经测量到高达 17 阶的 Stokes SRO, 这说明  $\text{CCl}_4$  具有很大的 Raman 增益。在紫外光泵浦下,  $\text{CCl}_4$  液滴中 SRO 的抑制可以从它的吸收来加以解释。我们采用一个 45 cm 长的长程吸收池测量了乙醇和  $\text{CCl}_4$  的吸收, 发现  $\text{CCl}_4$  在 355 nm 处的吸收比乙醇大得多, 测得的吸收系数  $\alpha \sim 0.02\text{ cm}^{-1}$ 。根据文献[3]的分析可知, 当腔内存在吸收时, 则球体腔的本征模  $a_{n,l}$  (及  $b_{n,l}$ ) 的反馈系数将急剧降低, 对无吸收时具有高反馈亦即线宽  $\Delta x$  很窄的模则影响更为严重, 这就

强烈抑制了  $\text{CCl}_4$  液滴中的振荡。这个结果与染料液滴中的振荡波长明显比普通染料激光器的振荡波长要向长波移动是一致的。

感谢中国科学院自然科学基金及第三世界科学院基金对本科研项目的资助。

### 参 考 文 献

- 1 H. M. Tzeng *et al.*, *Opt. Lett.*, **9**, 499(1984)
- 2 J. B. Sonw *et al.*, *Opt. Lett.*, **10**, 37(1985)
- 3 S. X. Qian *et al.*, *Opt. Lett.*, **10**, 499(1985)
- 4 S. X. Qian *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **56**, 926(1986)
- 5 钱士雄, *光学学报*, **6**, 97(1986)
- 6 C. F. Bohren *et al.*, "Absorption and Scattering of Light by Small Particles"(John Wiley & Sons 1983)
- 7 P. R. Conwell *et al.*, *JOSA*, **A1**, 62(1984)
- 8 Y. R. Shen, "The Principles of Nonlinear Optics"(John Wiley & Sons, 1984)
- 9 A. Penzkofer *et al.*, *Prog. Quant. Electr.*, **6**, 55(1979)

(上接第 28 页)

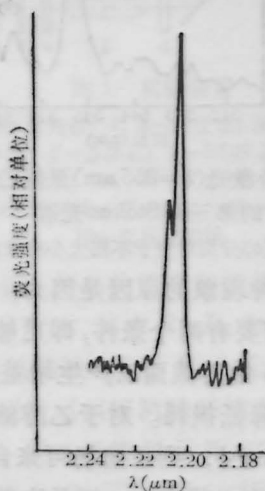


图 8 与 SHRS 级联的  $\text{Na}4\text{P}-4\text{S}$  荧光谱

表 3

跃 迁	理论值波长 (空气) ( $\mu\text{m}$ )	实验值波长 ( $\mu\text{m}$ )	相对强度
$4P_{3/2} \rightarrow 4S$	2.206	2.203	强
$4P_{1/2} \rightarrow 4S$	2.208	2.208	弱

### 参 考 文 献

- 1 E. K. Kraulinya *et al.*, *Chem. Phys. Lett.*, **37**(3), 565(1976)
- 2 D. Cotter *et al.*, *Opt. Commun.*, **22**(2), 190(1977)
- 3 D. Krokkel *et al.*, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE22**(3), 489(1986)